

[Previous Doc](#)    [Next Doc](#)    [Go to Doc#](#)  
[First Hit](#)

[Generate Collection](#)

L3: Entry 23 of 23

File: DWPI

Jun 26, 2002

DERWENT-ACC-NO: 2002-647770

DERWENT-WEEK: 200270

COPYRIGHT 2006 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Aluminum nitride spherical micro particles used as filler for sealing compositions prepared by thermal treatment in a flux

Basic Abstract Text (2):

DETAILED DESCRIPTION - Crystalline aluminum nitride spherical powder (0.1-100 micro m) particles, made by thermally treating an aluminum nitride powder with non-specific form in a flux and then removing them by dissolving in solution to isolate them. Raw aluminum nitride powder is synthesized by direct nitriding method, alumina reduction and nitriding method, or by vapor phase synthesizing method. Flux is made from oxides or nitrides of alkaline earth metals, rare earth metals, aluminum, ytterium, or lithium or from carbonates, nitrates, oxalates, hydroxides, halides, or alkoxides which produce them by thermal decomposition. Thermal treatment can also be carried out using aluminum nitride system composition synthesized from the raw mixture comprises flux components.

[Previous Doc](#)    [Next Doc](#)    [Go to Doc#](#)

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-179413

(P2002-179413A)

(43)公開日 平成14年6月26日(2002.6.26)

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

C 01 B 21/072

識別記号

F I

C 01 B 21/072

テーマコード(参考)

R

審査請求 有 請求項の数 5 O L (全 7 頁)

(21)出願番号 特願2000-378278(P2000-378278)

(22)出願日 平成12年12月13日(2000.12.13)

(71)出願人 301021533

独立行政法人産業技術総合研究所  
東京都千代田区霞が関1-3-1

(72)発明者 大橋 優喜

愛知県名古屋市千種区千代が丘1千代が丘  
団地103-603

(72)発明者 高尾 泰正

愛知県名古屋市北区八代町2-109 八代  
寮401

(72)発明者 山東 瞳夫

愛知県名古屋市緑区鳴子町5-41

(72)発明者 村瀬 嘉夫

愛知県名古屋市千種区千代田橋2-8-2

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 球状窒化アルミニウムフィラー及びその製造方法

(57)【要約】

【課題】 球状窒化アルミニウムフィラー及びその製造方法を提供する。

【解決手段】 直接窒化法、アルミナ還元窒化法、気相法等により合成された不定形の窒化アルミニウム粉末を、アルカリ土類元素、希土類元素、アルミニウム、イットリウム、リチウムの酸化物又は窒化物、乃至は加熱中の分解により上記のものを生じる炭酸塩、硝酸塩、シユウ酸塩、水酸化物、ハロゲン化物、アルコキシド等の前駆体となるフランクス中で熟成(熱処理)するか或いは、フランクス成分を予め加えて合成された窒化アルミニウム系の組成物を直接熱処理することにより、球状化させた後、フランクスを溶解して単離して作製した、平均粒子径が0.1~100ミクロンで、平滑な表面と球状の形態を持った、フランクス中での球状化ならびに粒成長を特徴とする結晶質窒化アルミニウム粉体。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 直接窒化法、アルミナ還元窒化法、気相法等により合成された不定形の窒化アルミニウム粉末を、アルカリ土類元素、希土類元素、アルミニウム、イットリウム、リチウムの酸化物又は窒化物、乃至は加熱中の分解により上記のものを生じる炭酸塩、硝酸塩、シウ酸塩、水酸化物、ハロゲン化物、アルコキシド等の前駆体よりなるフラックス中で熟成（熱処理）するか或いは、フラックス成分を予め加えて合成された窒化アルミニウム系の組成物を直接熱処理することにより、球状化させた後、フラックスを溶解して単離して作製した、平均粒子径が0.1～100ミクロンで、平滑な表面と球状の形態を持った、フラックス中の球状化ならびに粒成長を特徴とする結晶質窒化アルミニウム粉体。

【請求項2】 請求項1記載の球状窒化アルミニウム粉体を製造する方法であって、直接窒化法、アルミナ還元窒化法、気相法等により合成された不定形の窒化アルミニウム粉末を、アルカリ土類元素、希土類元素、アルミニウム、イットリウム、リチウムの酸化物又は窒化物、乃至は加熱中の分解により上記のものを生じる炭酸塩、硝酸塩、シウ酸塩、水酸化物、ハロゲン化物、アルコキシド等の前駆体よりなるフラックス中で熟成（熱処理）するか或いは、フラックス成分を予め加えて合成された窒化アルミニウム系の組成物を直接熱処理することにより、球状化させた後、フラックスを溶解して単離することを特徴とする球状窒化アルミニウム粉体の製造方法。

【請求項3】 使用する不定形の窒化アルミニウム粉末の初期粒径や粒度分布を変えて、あるいはフラックスの種類、熟成温度、熟成時間、処理回数を変えて粒径や粒度分布を任意に制御した請求項1記載の球状窒化アルミニウム粉体。

【請求項4】 請求項3記載の粒径の異なる球状窒化アルミニウム粉体を2種類以上混合して作製した充填性に優れた球状窒化アルミニウム粉体。

【請求項5】 請求項1、3又は4記載の球状窒化アルミニウム粉体において、不定形の窒化アルミニウム原料粉末をフラックス中で球状化した後、フラックス部分を酸性溶液中で溶解する際に、溶液中に含まれる水により窒化アルミニウム表面を部分的に酸化処理し、酸化保護膜を付与した球状窒化アルミニウム粉体。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、球状窒化アルミニウムフィラー及びその製造方法に関し、主にパワーデバイス用の封止材用フィラーとしての用途が期待される高熱伝導性窒化アルミニウム粉末を、樹脂に配合する際の流動性や充填性を高める目的で球状化した球状窒化アルミニウム粉体とその製造方法に関するものであり、更に詳しくは、本発明は、直接窒化法及びアルミナ還元窒化

法等により合成された不定形の窒化アルミニウム粉末をアルカリ土類元素、希土類元素、アルミニウム、イットリウム、リチウムの酸化物又は窒化物、乃至は加熱中の分解により上記のものを生じる前駆体（炭酸塩、硝酸塩、シウ酸塩、水酸化物、ハロゲン化物、アルコキシド等）よりなる単体及び複合フラックス中で熟成して球状化した後、単離して作製した平滑な表面を持った球状結晶質窒化アルミニウムフィラー及びその製造方法に関する。

## 10 【0002】

【従来の技術】電子部品の多くは使用中に熱を発生するため、その部品を適切に機能させるためには、高熱伝導かつ電気絶縁性を有する窒化アルミニウムを放熱材料として利用することが期待されている。従来、封止材用窒化アルミニウムフィラーは、主に直接窒化法により合成した窒化アルミニウムを粉碎・分級することにより作製してきた。しかし、このような破碎状フィラーは、樹脂中に配合した際の流動性に欠け、高充填化が難しかった。

## 20 【0003】

【発明が解決しようとする課題】このような状況の中で、本発明者らは、樹脂に配合する際の流動性や充填性に優れた、平滑な表面と球状の形態を持った球状結晶質窒化アルミニウムフィラーとその製造法を開発することを目標として鋭意研究を重ねた結果、不定形の窒化アルミニウム粉体を単体又は複合フラックス中で熟成（熱処理）して球状化する方法を採用することにより所期の目的を達成し得ることを見出し、本発明を完成するに至った。本発明の目的は、樹脂、グリース、合成ゴム等のフィラーとして使用される、流動性、充填性に優れた、適当な粒径及び粒度分布を持つ球状の窒化アルミニウム粉体を提供することにある。

## 【0004】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するための本発明は、以下の技術的手段から構成される。

(1) 直接窒化法、アルミナ還元窒化法、気相法等により合成された不定形の窒化アルミニウム粉末を、アルカリ土類元素、希土類元素、アルミニウム、イットリウム、リチウムの酸化物又は窒化物、乃至は加熱中の分解

40 により上記のものを生じる炭酸塩、硝酸塩、シウ酸塩、水酸化物、ハロゲン化物、アルコキシド等の前駆体よりなるフラックス中で熟成（熱処理）するか或いは、フラックス成分を予め加えて合成された窒化アルミニウム系の組成物を直接熱処理することにより、球状化させた後、フラックスを溶解して単離して作製した、平均粒子径が0.1～100ミクロンで、平滑な表面と球状の形態を持った、フラックス中の球状化ならびに粒成長を特徴とする結晶質窒化アルミニウム粉体。

(2) 前記(1)記載の球状窒化アルミニウム粉体を製50 造する方法であって、直接窒化法、アルミナ還元窒化

法、気相法等により合成された不定形の窒化アルミニウム粉末を、アルカリ土類元素、希土類元素、アルミニウム、イットリウム、リチウムの酸化物又は窒化物、乃至は加熱中の分解により上記のものを生じる炭酸塩、硝酸塩、シュウ酸塩、水酸化物、ハロゲン化物、アルコキシド等の前駆体よりなるフラックス中で熟成（熱処理）するか或いは、フラックス成分を予め加えて合成された窒化アルミニウム系の組成物を直接熱処理することにより、球状化させた後、フラックスを溶解して単離することを特徴とする球状窒化アルミニウム粉体の製造方法。

(3) 使用する不定形の窒化アルミニウム粉末の初期粒径や粒度分布を変えて、あるいはフラックスの種類、熟成温度、熟成時間、処理回数を変えて粒径や粒度分布を任意に制御した前記(1)記載の球状窒化アルミニウム粉体。

(4) 前記(3)記載の粒径の異なる球状窒化アルミニウム粉体を2種類以上混合して作製した充填性に優れた球状窒化アルミニウム粉体。

(5) 前記(1)、(3)又は(4)記載の球状窒化アルミニウム粉末において、不定形の窒化アルミニウム原料粉末をフラックス中で球状化した後、フラックス部分を酸性溶液中で溶解する際に、溶液中に含まれる水により窒化アルミニウム表面を部分的に酸化処理し、酸化保護膜を付与した球状窒化アルミニウム粉体。

#### 【0005】

【発明の実施の形態】 続いて、本発明について更に詳細に説明する。本発明の目的は、上述のように、直接窒化法及びアルミナ還元窒化法等により合成された不定形の窒化アルミニウム粉末をアルカリ土類元素、希土類元素、アルミニウム、イットリウム、リチウムの酸化物又は窒化物、乃至は加熱中の分解により上記のものを生じる前駆体（炭酸塩、硝酸塩、シュウ酸塩、水酸化物、ハロゲン化物、アルコキシド等）よりなる单体及び複合フラックス中で熟成（熱処理）して球状化した後、酸処理してフラックス部分を溶かし、球状粒子を単離することにより達成された。また、原料粉末の初期粒径、熟成の際の温度及び処理時間を調整することにより得られる球状粒子の粒径を制御し、更に、粒径制御された数種類の粉体を混合することにより、適当な粒度分布を持った球状窒化アルミニウムフィラーを作製することが可能である。

【0006】 本発明は、主にパワーデバイス用の封止材用フィラーとしての用途が期待される高熱伝導性窒化アルミニウム粉末を、樹脂に配合する際の流動性や充填性を高める目的で球状化した窒化アルミニウム粒子とその製造方法に関するものである。本発明においては、直接窒化法及びアルミナ還元窒化法により合成された不定形の窒化アルミニウム粉末をフラックス中で熟成し、球状化させる。この場合、上記不定形の窒化アルミニウム粉末をアルカリ土類元素、希土類元素、アルミニウム、イ

ットリウム、リチウムの酸化物又は窒化物、乃至は加熱中の分解により上記のものを生じる前駆体（炭酸塩、硝酸塩、シュウ酸塩、水酸化物、ハロゲン化物、アルコキシド等）よりなるフラックスと混合するが、好適には、上記不定形の窒化アルミニウム粉末を上記フラックスと95～20：5～80のモル比で混合する。次に、これらを熟成（熱処理）し、球状化するが、この場合、好適には、窒素又はアルゴン雰囲気中、1600～2000°Cで熱処理して得られた凝集体を、粉碎した後、塩酸、

10 硝酸等の適宜の酸性溶液中で攪拌しながらフラックス部分を溶かし、平滑な表面を持った球状窒化アルミニウムを単離する。また、上記方法と同等の方法として、上記フラックス成分を予め加えて合成された窒化アルミニウム系の組成物を直接熱処理することにより、球状化することも適宜可能である。

【0007】 上記方法において、添加したフラックス成分（例えば、酸化カルシウム）は、窒化アルミニウム表面の酸化アルミニウム及び一部の窒化アルミニウムと反応して溶融物（Ca-Al-O-(N)系融体）を形成する。この溶融物中で窒化アルミニウムの溶解・析出が起こり、窒化アルミニウムが球状化して行く。冷却後、固化及び結晶化したフラックス部分（CaAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>、Ca-Al-O-(N)系ガラス）は、酸に容易に溶解し、球状窒化アルミニウムが単離される。また、本発明において、初期粒径、熟成の際の温度、処理時間、処理回数を調整することにより任意に粒径を制御し、更に、粒径制御された数種類の粉体を混合することにより、適当な粒度分布を持った高密度充填に適した球状窒化アルミニウムフィラーが作製できる。具体的には、例えば、

20 30 2粒径成分を混合して高密度充填を目指す場合、一般的な粒子の充填性の向上化方法に準じて、微粒に対する粗粒の粒径を7倍以上とし、微粒成分0.3（粗粒0.7）程度の組成比で混合することにより充填性を高めることが可能である（例えば、R. K. McGreary, J. Am. Ceram. Soc., 44, 513-22 (1961)、伊賀武雄, セラミック協会誌, 103, 850-56 (1995)）。

【0008】 このようにして得られた窒化アルミニウムは、例えば、平均粒子径が0.1～100ミクロンで、平滑な表面と球状の形態を持つ。更に、数種類の粉体を40 混合し、適当な粒度分布を持った球状粉末は、高い流動性と高密度充填可能な高熱伝導性封止材等のフィラーとして最適である。

#### 【0009】

【実施例】 次に、実施例に基づいて本発明を具体的に説明するが、以下の実施例は本発明の好適な一例を示すものであり、本発明は、当該実施例によって何ら限定されるものではない。

##### 実施例1

アルミナ還元窒化法により合成された窒化アルミニウム50 微粉末（平均一次粒径0.5ミクロン）を炭酸カルシウ

ムと80:20のモル比で混合した後、窒素雰囲気中、1700~1900°Cで2~12時間熱処理して得られた凝集体を、粉碎した後、(1+1)塩酸溶液中で攪拌しながらフラックス部分を溶かし、球状化した窒化アルミニウムを単離した。単離した窒化アルミニウムの平均粒径を図1に示す。熱処理温度を1700から1900°Cまで、処理時間を12時間まで延ばすことにより、平均粒径を4ミクロンまで任意に制御することができた。また、フラックス中の溶解再析出反応により球状化が進むため、処理時間が長くなるほど、粒径が均一化した。図2に1800°Cで6時間熟成させて作製した球状窒化アルミニウム粒子のSEM写真を示す。粒径の揃った平滑な表面を持つ球状窒化アルミニウム粒子であることが分かる。

#### 【0010】実施例2

直接窒化法により合成された粒径の異なる3種類(a, b, c; 初期平均粒径2, 7, 13ミクロン)の破碎状窒化アルミニウム粉末を炭酸カルシウムと80:20のモル比で混合した後、窒素雰囲気中、1800°Cで12時間熱処理して得られた凝集体を、粉碎した後、(1+1)塩酸溶液中で攪拌しながらフラックス部分を溶かし、球状化した窒化アルミニウムを単離した。熟成後の各球状窒化アルミニウムのSEM写真を図3に示す。1800°C、12時間の熟成により、破碎状の角張った形状をした粒子は、尖った部分或いは粒径の小さな粒子が選択的に溶解し、凹んだ部分に再析出した結果、すべて球状化された。このように初期粒径を変えることによっても粒径制御が可能である。特にフィラーとして有用な10ミクロン以上粒径を持つ粒子についても、初期粒径の大きな出発原料を選択することにより、比較的短時間で作製ができる。

#### 【0011】実施例3

アルミナ還元窒化法により合成された窒化アルミニウム微粉末(平均一次粒径0.5ミクロン)を炭酸カルシウム及び酸化イットリウム(Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)と80:10:1

0、80:20:10、及び80:0:20のモル比で混合した後、窒素雰囲気中、1800°Cで6時間熱処理し、球状窒化アルミニウムフィラーの作製を行った。80:10:10及び80:20:10の組成比においては、炭酸カルシウムのみをフラックスとして用いた場合と同様に(1+1)塩酸溶液中で攪拌しながらフラックス部分を溶かし、球状化した窒化アルミニウムを単離することが可能であった。しかし、酸化イットリウムのみを使用した場合、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>やY<sub>4</sub>A<sub>12</sub>O<sub>9</sub>等が残留し易い。フラックス中に析出したこれらの結晶相は、窒化アルミニウムに比べて粒径が非常に小さいので、酸処理後に分級処理をすることにより球状窒化アルミニウムを単離することができる。

#### 【0012】

【発明の効果】以上詳細に説明したように、本発明は、直接窒化法及びアルミナ還元窒化法等により合成された不定形の窒化アルミニウム粉末をアルカリ土類元素、希土類元素、アルミニウム、イットリウム、リチウムの酸化物又は窒化物、乃至は加熱中の分解により上記のものを生じる前駆体(炭酸塩、硝酸塩、シュウ酸塩、水酸化物、ハロゲン化物、アルコキシド等)よりなる単体及び複合フラックス中で熟成(熱処理)して球状化した窒化アルミニウムとその製造方法に関するものであり、本発明により、得られた球状窒化アルミニウムは、任意に粒径が制御されており、更に、得られた数種類の球状粉体を混合することにより、適当な粒度分布を持った粉末とすることが可能である。従って、この球状窒化アルミニウムは、高い流動性と高密度充填性が期待でき、高熱伝導性封止材等のフィラーとして最適である。

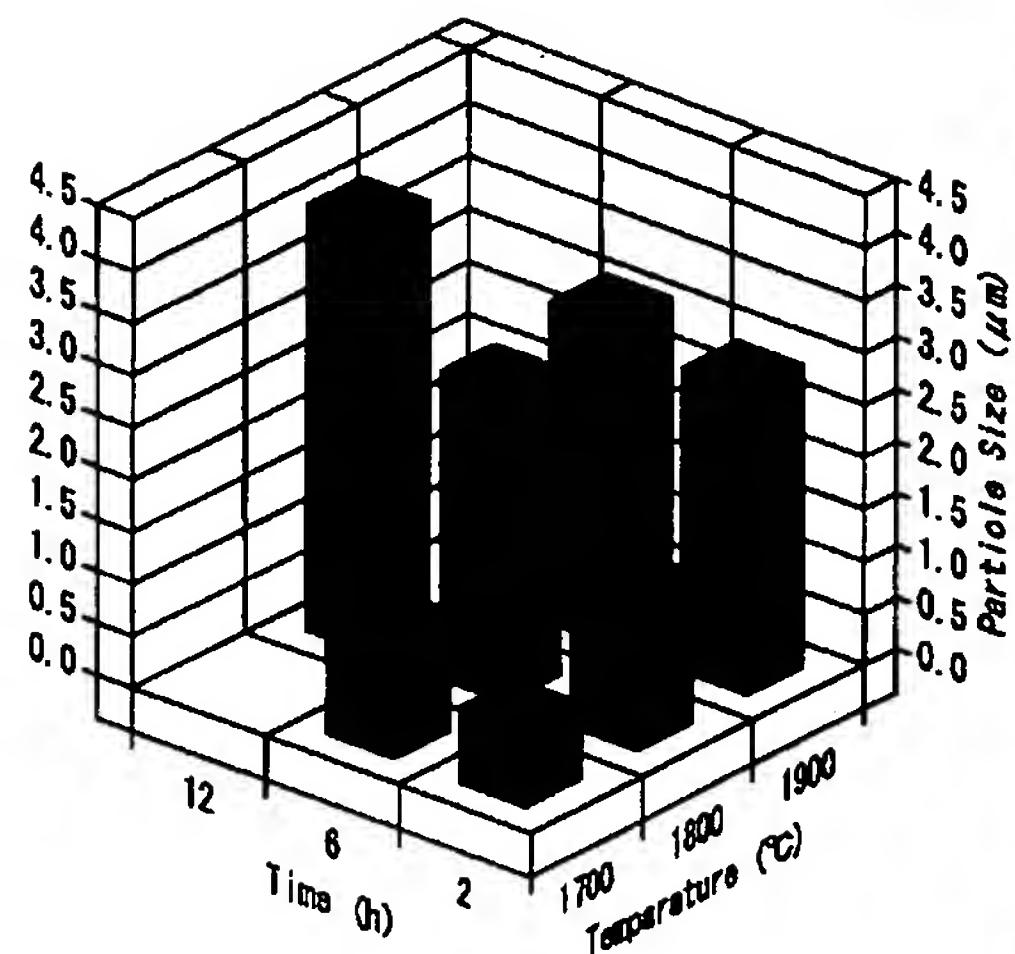
#### 【図面の簡単な説明】

【図1】単離した窒化アルミニウムの平均粒径を示す。

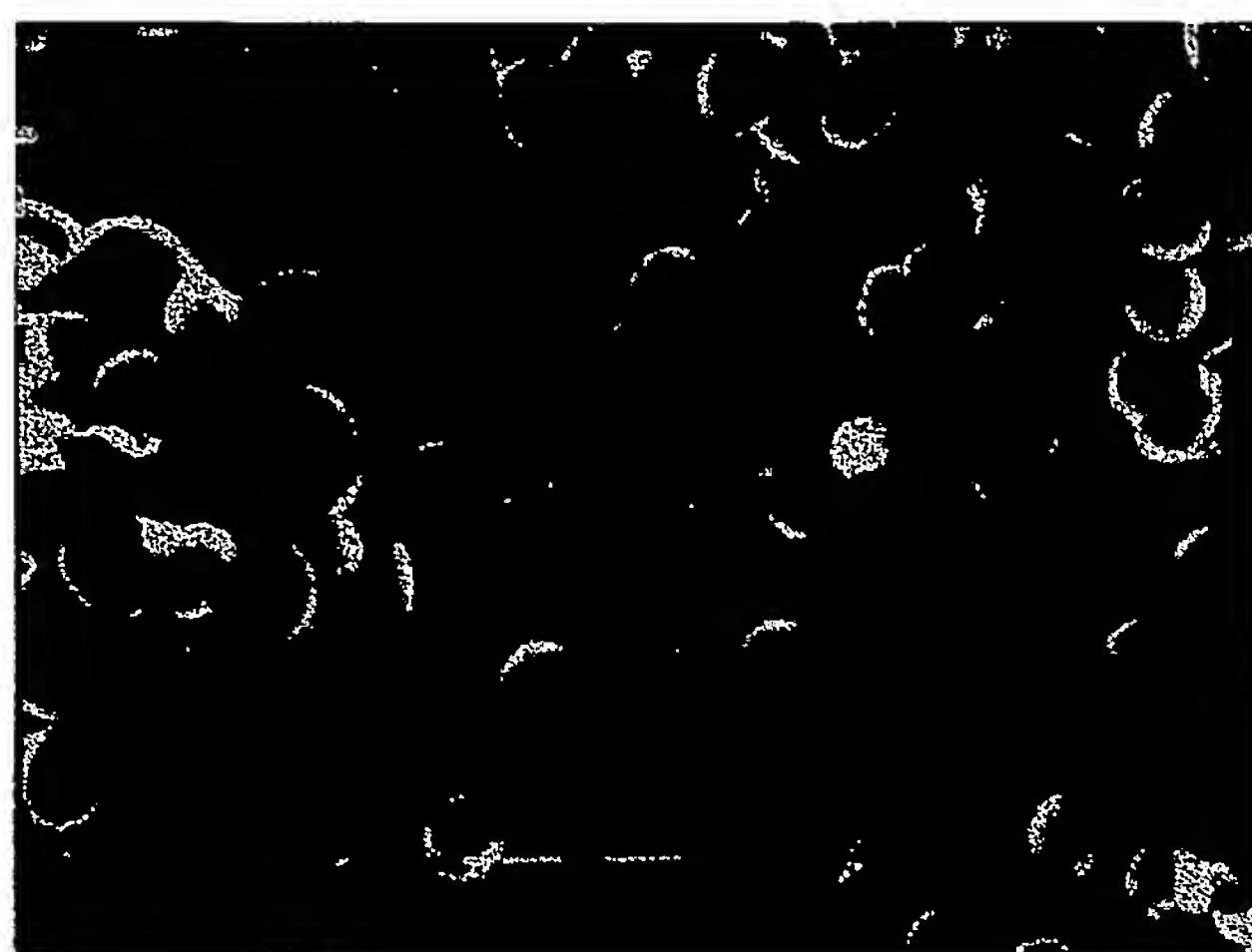
【図2】1800°Cで6時間熟成させて作製した球状窒化アルミニウム粒子のSEM写真を示す。

【図3】熟成後の各球状窒化アルミニウムのSEM写真を示す。

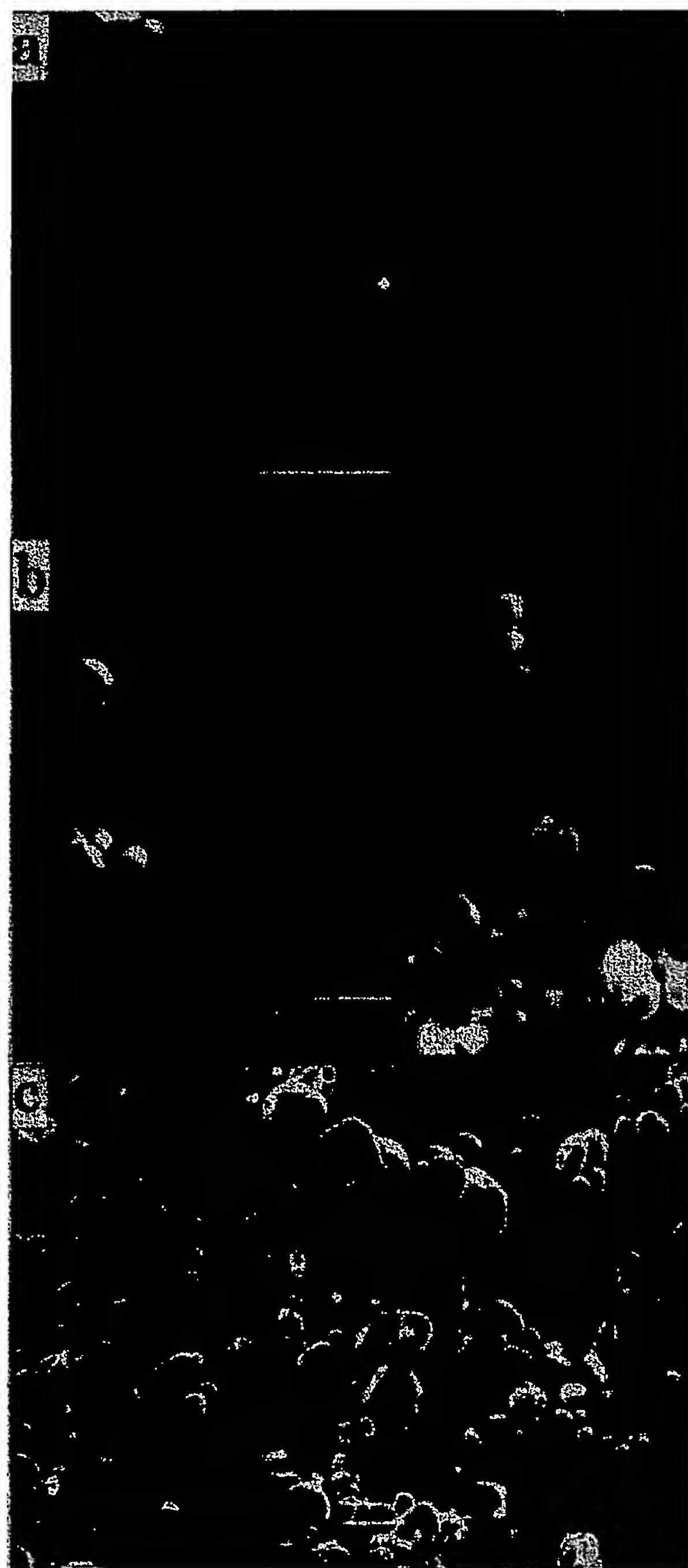
【図1】



【図2】



【図3】



---

フロントページの続き

(72)発明者 川上 省二

愛知県名古屋市西区貝田町2-50 松前貝  
田マンションF-10

(72)発明者 砥綿 篤哉

愛知県名古屋市北区八代町2-109 八代  
寮304

(72)発明者 太田 一徳  
愛知県尾西市北今字小家1771

(72)発明者 楠本 廉二  
愛知県名古屋市名東区平和が丘3-72